# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/005224

International filing date: 23 March 2005 (23.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP

Number: 2004-092618

Filing date: 26 March 2004 (26.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 26 May 2005 (26.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



# 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

JP2004-092618

出願年月日

Date of Application: 2004年 3月26日

出 願 番 号

Application Number: 特願2004-092618

パリ条約による外国への出願 に用いる優先権の主張の基礎 となる出願の国コードと出願 番号

The country code and number of your priority application,

to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

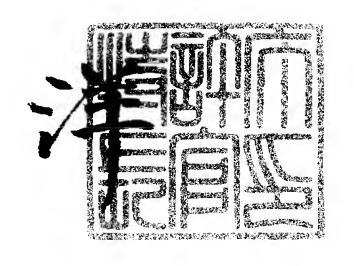
出 願 人 松下電工株式会社

Applicant(s): 株式会社アイメス

2005年 5月11日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office





【書類名】 特許願 【整理番号】 0 4 P 0 0 5 9 7 【提出日】 平成16年 3月26日 【あて先】 特許庁長官殿 【国際特許分類】 H05B 33/02【発明者】 大阪府門真市大字門真1048番地 松下電工株式会社内 【住所又は居所】 伸弘 【氏名】 井出 【発明者】 神奈川県藤沢市桐原町3番地 株式会社アイメス内 【住所又は居所】 【氏名】 遠藤 潤 【発明者】 【住所又は居所】 山形県米沢市林泉寺3-12-16 【氏名】 城戸 淳二 【特許出願人】 【識別番号】 0 0 0 0 0 5 8 3 2 【氏名又は名称】 松下電工株式会社 【特許出願人】 【識別番号】 5 9 3 1 9 1 3 5 0 【氏名又は名称】 株式会社アイメス 【代理人】 【識別番号】 100087767 【弁理士】 【氏名又は名称】 西川 惠清 【電話番号】 06-6345-7777【選任した代理人】 【識別番号】 100085604 【弁理士】 【氏名又は名称】 厚夫 森 【手数料の表示】 【予納台帳番号】 053420 【納付金額】 21,000円 【提出物件の目録】 【物件名】 特許請求の範囲 【物件名】 明細書 【物件名】 図面 【物件名】 要約書

【包括委任状番号】

9 0 0 4 8 4 4

# 【書類名】特許請求の範囲

# 【請求項1】

陽極と陰極の間に複数の発光層を備え、各発光層が等電位面を形成する層もしくは電荷 発生層で仕切られた有機発光素子において、素子内部と素子外部の少なくとも一方に発光 層で発光した光を散乱させる光散乱手段を備えて成ることを特徴とする有機発光素子。

# 【請求項2】

陽極と陰極の少なくとも一方を光散乱性かつ光反射性の電極で形成して、上記光散乱手段を構成して成ることを特徴とする請求項1に記載の有機発光素子。

# 【請求項3】

陽極と陰極の少なくとも一方を光透過性電極で形成し、この光透過性電極の発光層と反対側に光散乱性かつ光反射性の要素を設けて、上記光散乱手段を構成して成ることを特徴とする請求項1に記載の有機発光素子。

# 【請求項4】

陽極と陰極の少なくとも一方を、光散乱性かつ光透過性の電極で形成して、上記光散乱手段を構成して成ることを特徴とする請求項1に記載の有機発光素子。

# 【請求項5】

陽極と陰極の少なくとも一方を光透過性電極で形成し、この光透過性電極の発光層と反対側に光散乱性且つ光透過性の要素を設けて、上記光散乱手段を構成して成ることを特徴とする請求項1に記載の有機発光素子。

# 【請求項6】

等電位面を形成する層もしくは電荷発生層を光散乱性に形成して、上記光散乱手段を構成して成ることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか記載の有機発光素子。

#### 【請求項7】

陽極と陰極の間に複数の発光層を備え、各発光層が等電位面を形成する層もしくは電荷発生層で仕切られた有機発光素子において、陽極と陰極をともに光透過性電極で形成し、一方の光透過性電極の発光層と反対側に光反射性の要素を設けると共に、この光反射性の要素と発光層との距離を、実質的に光学干渉をしない距離に設定して成ることを特徴とする有機発光素子。

#### 【請求項8】

複数の発光層は、少なくとも2種類の異なる発光色の発光層からなることを特徴とする請求項1乃至7のいずれかに記載の有機発光素子。

#### 【請求項9】

発光色が白色であることを特徴とする請求項1乃至8のいずれかに記載の有機発光素子

### 【書類名】明細書

【発明の名称】有機発光素子

# 【技術分野】

# 

本発明は、フラットパネルディスプレイ、液晶表示機用バックライト、照明用光源、電 飾、サイン用光源などに用いられる有機発光素子に関するものである。

# 【背景技術】

# $[0\ 0\ 0\ 2]$

有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)と称される有機発光素子は、一般に、透明電極からなる陽極、ホール輸送層、有機発光層、電子注入層、陰極の順に、透明基板の片側の表面に積層した構成で形成されている。そして陽極と陰極の間に電圧を印加することによって、電子注入層を介して発光層に注入された電子と、ホール輸送層を介して発光層に注入されたホールとが、発光層内で再結合し、励起状態が生成して発光が起こり、発光層で発光したこの光は透明電極及び透明基板を通して取り出されるようになっている。

# [0003]

上記のような有機発光素子において、近年、高輝度発光で長寿命を達成するために、陽極と陰極の間に複数の有機発光層を積層すると共に、隣り合う各発光層の間に、当電位面を形成する層、もしくは電荷発生層を設けるようにした、いわゆるマルチフォトン素子が提案されている(特許文献1、特許文献2、特許文献3等参照)。

#### $[0\ 0\ 0\ 4]$

図12はこのようなマルチフォトン素子として形成される有機発光素子の構造の一例を示すものであり、陽極1と陰極2の間に複数の発光層3を、隣接する発光層3の間に等電位面を形成する層4もしくは電荷発生層4を介在させた状態で積層し、これを透明基板10の表面に積層したものであり、陽極1は光透過性の電極として、陰極2は光反射性の電極として形成してある。尚、図12において、発光層3の両側にはホール輸送層と電子注入層が設けられているが、ホール輸送層と電子注入層の図示は省略してある。そしてこのように複数層の発光層3を等電位面形成層もしくは電荷発生層4で仕切ることによって、複数の発光層3があたかも直列的に接続された状態で同時に発光し、各発光層3からの光が合算されることで、従来型の有機発光素子(有機EL素子)では実現不可能であった高い電流効率、量子効率を実現することができ、高輝度発光させることができるものである(特許文献2、特許文献3の記載参照)。

#### $[0\ 0\ 0\ 5]$

ここで、有機発光素子は、光学波長オーダーの膜厚の薄膜デバイスであること、素子内 に屈折率段差もしくは金属面等からなる反射面を備えること、高屈折率媒体の発光層で光 が発光すること、がその構造の特徴として挙げられる。そしてこの構造によって、光干渉 効果、全反射によって有機膜の発光層や基板、電極など、高屈折率媒体内への光の閉じ込 め等の現象が生じ、この結果、発光輝度、発光スペクトルの角度依存性、膜厚依存性、お よび光利用効率の低下が観測される。この問題は上記の複数層の発光層を備えるマルチフ ォトン素子の有機発光素子においても生じるものである。光干渉効果は、それを適切に利 用すれば、色純度の向上、指向性の制御等を実現することが可能であり、特にフラットパ ネルディスプレイ等の用途に有用である。例えは引用文献4及び引用文献5には、発光層 一光反射性の電極間の光学距離を1/4波長の偶数倍に調整することや、発光層一最大屈 折率段差位置間の光学距離を1/4波長の偶数倍に調整することで、この波長を強調する ことが可能であることが記載されており、特に発光層ー光反射性の電極間の光学距離が発 光スペクトルに与える影響が大きいことが知られている。さらに前記の特許文献3には、 複数の発光層のそれぞれの発光位置から光反射性の電極までの光学膜厚をすべて1/4波 長の奇数倍にすることで、最も高効率の発光が得られると共に、発光スペクトル形状が細 くなることが記載されている。

#### [0006]

しかし、上記のように発光層一光反射性の電極間の光学距離や、発光層一最大屈折率段差位置間の光学距離、つまり素子の膜厚の最適化によって色純度等の適正化を行なった有機発光素子では、膜厚が変化した際の発光輝度や発光色の変動が大きくなる。これはすなわち、有機発光素子の製造時の許容される膜厚ぶれが小さくくなることを意味するものであり、生産性の問題に直結するものである。特に複数の発光層や等電位面形成層もしくは電荷発生層などを積層した構造の上記のような有機発光素子では、いずれかの層の膜厚異常が他の層の光学位置にさえも影響を及ぼすため、膜厚制御の精度や必然性がさらに増大することになる。

# [0007]

さらに上記の特許文献3のものでは、発光層一光反射性の電極間の光学距離を1/4波長の奇数(2n+1)  $[n=0,1,2\cdots]$  倍に設定するが、nの値が大きくなるに伴なって、輝度やスペクトルの角度依存性が大きくなることが知られている。すなわち、発光層を一層のみ有する有機発光層では、概ねn=0に相当する光学長で膜厚設計がなされることが多いために、膜厚変化に対する発光輝度、発光色の変動は必ずしも大きくないが、上記のような複数層の発光層を備える有機発光素子においては、各発光層が1/4波長の2n+1 倍の位置に必然的に位置するため、層数の増大に伴なって特定の波長がより顕著に強調され、発光層が本来有するスペクトルとは大きく異なる発光スペクトルを与えると同時に角度依存性が大きくなる問題を有するものである。

#### [0008]

従って、等電位面形成層もしくは電荷発生層で仕切った複数層の複数の発光層を有する上記の有機発光素子は、確かに、従来型の有機発光素子では実現不可能であった高い電流効率、量子効率を実現することができるが、その発光スペクトルおよび角度依存性に関しては、必ずしも好ましい特性を有するものではない。

# [0009]

前記の特許文献3には、このような問題を解決するために、複数の発光層を備える有機発光層において、発生した光の一部を光吸収手段で吸収させ、あるいは光乱反射手段で乱反射させることによって、光干渉効果が消失し、発光位置から光反射電極までの光学膜厚の調整が実質的に不要であるとの記載がある。しかしこの特許文献3には、有機発光素子が有する角度依存性の問題については何ら言及がなく、依然として上記の問題は解決されていない。

【特許文献1】特開平11-329748号公報

【特許文献2】特開2003-45676号公報

【特許文献3】特開2003-272860号公報

【特許文献4】特開平7-240277号公報

【特許文献5】特開2000-323277号公報

#### 【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

### 

本発明は上記の点に鑑みてなされたものであり、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができると共に、膜厚変動に対する発光輝度、発光色の変化が小さく、さらに光の利用効率を高くすることができる有機発光素子を提供することを目的とするものである。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 

本発明の請求項1に係る有機発光素子は、陽極1と陰極2の間に複数の発光層3を備え、各発光層3が等電位面を形成する層4もしくは電荷発生層4で仕切られた有機発光素子において、素子内部と素子外部の少なくとも一方に発光層3で発光した光を散乱させる光散乱手段5を備えて成ることを特徴とするものである。

#### $[0\ 0\ 1\ 2]$

また請求項2の発明は、請求項1において、陽極1と陰極2の少なくとも一方を光散乱

性かつ光反射性の電極で形成して、上記光散乱手段5を構成するようにしたものである。

# [0013]

また請求項3の発明は、請求項1において、陽極1と陰極2の少なくとも一方を光透過性電極で形成し、この光透過性電極の発光層3と反対側に光散乱性かつ光反射性の要素6を設けて、上記光散乱手段5が構成されるようにしたものである。

# $[0\ 0\ 1\ 4\ ]$

また請求項4の発明は、請求項1乃至3のいずれかにおいて、陽極1と陰極2の少なくとも一方を、光散乱性かつ光透過性の電極で形成して、上記光散乱手段5が構成されるようにしたものである。

# [0015]

また請求項5の発明は、請求項1において、陽極1と陰極2の少なくとも一方を光透過性電極で形成し、この光透過性電極の発光層3と反対側に光散乱性且つ光透過性の要素7を設けて、上記光散乱手段5が構成されるようにしたものである。

# [0016]

また請求項6の発明は、請求項1乃至5のいずれかにおいて、等電位面を形成する層4 もしくは電荷発生層4を光散乱性に形成することによって、上記光散乱手段5が構成されるようにしたものである。

# $[0\ 0\ 1\ 7]$

本発明の請求項7に係る有機発光素子は、陽極1と陰極2の間に複数の発光層3を備え、各発光層3が等電位面を形成する層4もしくは電荷発生層4で仕切られた有機発光素子において、陽極1と陰極2をともに光透過性電極で形成し、一方の光透過性電極の発光層3と反対側に光反射性の要素8を設けると共に、この光反射性の要素8と発光層3との距離を、実質的に光学干渉をしない距離に設定して成ることを特徴とするものである。

#### $[0\ 0\ 1\ 8]$

また請求項8の発明は、請求項1乃至7のいずれかにおいて、複数の発光層3は、少なくとも2種類の異なる発光色の発光層3からなることを特徴とするものである。

#### $[0\ 0\ 1\ 9\ ]$

また請求項9の発明は、請求項1乃至8のいずれかにおいて、発光色が白色であることを特徴とするものである。

#### 【発明の効果】

#### $[0 \ 0 \ 2 \ 0]$

本発明(請求項1~6)によれば、発光層3で発光した光を光散乱手段5で散乱させた 状態で出射させることによって、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができ るものであり、この結果、膜厚変動に対する発光輝度、発光色の変化が小さくなり、さら に光の利用効率を高くすることができるものである。

# [0021]

また本発明(請求項7)によれば、光反射性の要素8と発光層3を光学干渉しない距離に離すことによって、発光層3で発光した光を干渉むらなどが発生することを防いだ状態で出射させることができ、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものであり、この結果、膜厚変動に対する発光輝度、発光色の変化が小さくなり、さらに光の利用効率を高くすることができるものである。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### $[0\ 0\ 2\ 2]$

以下、本発明を実施するための最良の形態を説明する。

#### $[0\ 0\ 2\ 3]$

図1は請求項1及び2の発明の実施の形態の一例を示すものであり、陽極1と陰極2の間に複数の発光層3を、隣接する発光層3の間に等電位面を形成する層4もしくは電荷発生層4を介在させた状態で積層し、これを基板10の表面に積層してある。ここで、各発光層3の陽極1側には必要に応じてホール輸送層が、陰極2側には必要に応じて電子注入層が積層されているが、図1(後述の各図においても同じ)にはこれらのホール輸送層と

電子注入層の図示は省略してある。また図1(後述の各図においても同じ)には三層の発光層3と二層の等電位面形成層4もしくは電荷発生層4の構成を示したが、図には一例を示すだけであり、層数はこれらに限定されるものでないのはいうまでもない。

# [0024]

そして図1の実施の形態では、陽極1は光反射性の電極として形成してあり、陰極2は 光透過性の電極として形成してあるが、逆に陽極1を光透過性の電極として形成すると共 に陰極2を光反射性の電極として形成するようにしてもよく、陽極1と陰極2を逆にして 陰極2を基板10の表面に形成するようにしてもよい。

# [0025]

光反射性電極は、その材質や形成方法は特に限定されないものであり、本発明の効果の妨げにならない限り任意のものを用いることができるが、陰極 2 を光反射性電極として用いる場合には、例えば A 1 、Z r 、T i 、Y 、S c 、A g 、I n 、r ルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属等の金属単体、もしくはこれらの金属の合金または酸化物、ハロゲン化物、あるいはこれらと特開平 1 0 -2 4 0 1 7 1 号公報等に記載されている金属ドーピング有機層の併用、などを挙げることができる。また陽極 1 を光反射性電極として用いる場合には、例えば A u 、P d 、P t 等の金属などを用いることができる。また、インジウムー 錫酸化物(I T O)、 30 酸化物、 A u 等の金属の極薄膜、導電性高分子、導電性の有機材料等による光透過性の電極と何らかの反射面を組み合わせて光反射性電極とすることも可能である。

# [0026]

光透過性電極についても、本発明の効果の妨げにならない限り任意のものを用いることができるものであり、例えばインジウムー錫酸化物(ITO)、インジウムー亜鉛酸化物(IZO)、錫酸化物、Au等の金属の極薄膜、導電性高分子、導電性の有機材料、ドーパント(ドナーもしくはアクセプタ)含有有機層、およびこれらの積層体等を挙げることができる。

# [0027]

また発光層3に使用できる有機発光材料またはドービング材料としては、アントラセン、ナフタレン、フタロベリレン、ナフタロベリレン、サフタロベリレン、ナフタロベルン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、シクロベンタジエン、キノリン金属錯体、トリス(8ーヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体、トリス(4ーメチルー8ーキノリナート)アルミニウム錯体、トリス(5ーフェニルー8ーキノリナート)アルミニウム 錯体、ペンゾキノリン金属錯体、トリー(pーターフェニーカーイル)アミン、1ーアリールー2,5ージ(2ーチエニル)ピロール誘導体、ビラスチリルアミン誘導体及び各種蛍光色素等があるが、これに限定されるものではない、シスチリルアミン誘導体及び各種蛍光色素等があるが、これに限定されるものではないがスチリルアミン誘導体及び各種蛍光色素等があるが、これに限定されるものではないがスチリルアミン誘導体及び各種蛍光色素等があるが、これに限定されるものではないが表別によりによる、10重量部含むようにすることも好ましい。また、前記化合物に代表される蛍光発光を生じる化合物のみならず、燐光発光を生じる燐光料料、およびそれらからなる部位を分子内の一部に有する化合物も好適に用いることができる。

#### [0028]

ホール輸送層を構成するホール輸送材料としては、ホールを輸送する能力を有し、陽極 1 からのホール注入効果を有するとともに、発光層 3 に対して優れたホール注入効果を有し、また電子のホール輸送層への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物を挙げることができる。具体的にはフタロシアニン誘導体、ナフタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、N, N'ービス(3 ーメチルフェニル)ー(1, 1 'ービフェニル)ー4, 4 'ージアミン(1 - PD) や4, 1 'ービス [1 - PD) 等の芳香族ジアミン化合物、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、テトラヒドロイミダゾール、ポリアリールアルカン、ブタジエン、1 + 1 ' + 1 ' - トリアリート

ス(N-(3-メチルフェニル)N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン(m-MTDATA)、及びポリビニルカルバゾール、ポリシラン、ポリエチレンジオキサイドチオフェン(PEDOT)等の導電性高分子等の高分子材料が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

# [0029]

電子輸送層を構成する電子輸送材料としては、電子を輸送する能力を有し、陰極2から の電子注入効果を有するとともに、発光層3に対して優れた電子注入効果を有し、さらに ホールの電子輸送層への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物を挙げることが できる。具体的には、フルオレン、バソフェナントロリン、バソクプロイン、アントラキ Jジメタン、ジフェノキノン、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダ ゾール、アントラキノジメタン等やそれらの化合物、金属錯体化合物もしくは含窒素五貝 環誘導体である。具体的には、金属錯体化合物としては、トリス(8ーヒドロキシキノリ ナート) アルミニウム、トリ(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) アルミニウム 、トリス(8 — ヒドロキシキノリナート)ガリウム、ビス(1 0 — ヒドロキシベンゾ [ h コキノリナート)ベリリウム、ビス(10ーヒドロキシベンゾ [h]キノリナート)亜鉛 、ビス(2-メチル-8-キノリナート)(0-クレゾラート)ガリウム、ビス(2-メ チルー8-キノリナート)(1-ナフトラート)アルミニウム等があるが、これらに限定 されるものではない。また含窒素五貝環誘導体としては、オキサゾール、チアゾール、オ キサジアゾール、チアジアゾールもしくはトリアゾール誘導体が好ましい。具体的には、 2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサゾール、2,5-ビス(1-フェニ ル) -1,3,4-チアゾール、2,5-ビス(1-フェニル) -1,3,4-オキサジ r y - u、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)1,3 , 4 — オキサジアゾール、2,5 — ビス(1 — ナフチル) — 1,3,4 — オキサジアゾー ーナフチル) - 1, 3, 4 - トリアゾール、3 - (4 - ビフェニルイル) - 4 - フェニル - 5 - (4 - t - ブチルフェニル) - 1 , 2 , 4 - トリアゾール等があるが、これらに限 定されるものではない。さらに、ポリマー有機エレクトロルミネッセンス素子に使用され るポリマー材料も使用することができる。例えば、ポリパラフェニレン及びその誘導体、 フルオレン及びその誘導体等である。

# [0030]

また、等電位面を形成する層 4 は、特許文献 2 に記載されているように、電圧印加時に層内で厚さ方向にも、面方向にも電位差が実質的にない層を意味するものであり、具体的には比抵抗が  $1.0\times10^2$   $\Omega\cdot c$  m未満の物質からなるものである。既述のように有機発光素子では、陰極 2 側から発光層 3 に注入された電子と、陽極 1 側から発光層 3 に注入されたホールとが、発光層 3 内で再結合し、励起状態を生成して発光が起こるものであるが、複数の発光層 3 をこの等電位面形成層 4 で仕切ることによって、複数の各発光層 3 内でそれぞれ電子ーホール再結合が生じ、複数の発光を陽極 1 と陰極 2 の間で発生させることができるものである。

# [0031]

等電位面形成層 4の材料としては、特許文献 2に記載されるものを用いることができ、特に限定されるものではないが、導電材料からなる層、透明性を有する程度の極薄の金属薄膜、誘電体と金属膜を積層してなる構造のもの、導電性有機物などを挙げることができる。具体的には、ITO、IZO、 $SnO_2$ 、 $ZnO_2$ 、Alo 薄膜、 $Au/Bi_2O_2$ 、フラーレン類、金属フタロシアニンなどがその例である。

#### $[0 \ 0 \ 3 \ 2]$

また電荷発生層 4 は、特許文献 3 に記載されているように、 $1.0 \times 10^2 \Omega$ ・c m以上の比抵抗を有する電気的絶縁層であり、電圧印加時に陰極 2 方向にホールを、陽極 1 方向に電子をそれぞれ注入する役割を果たす層である。そして複数の発光層 3 をこの電荷発生層 4 で仕切ることによって、陰極 2 と陽極 1 の間に挟まれた全ての層(発光層 3 や電荷発生層 4 など)が電気絶縁層から形成されているにも拘わらず、電荷発生層 4 で複数の発

光層3が直列に接続されているように振る舞うことになり、複数の発光を陽極1と陰極2の間で発生させることができるものである。

# [0033]

電荷発生層4の材料としては、特許文献3に開示されているものを用いることができ、特に限定されるものではないが、五酸化バナジウムや、例えば電荷移動錯体として、ラジカルカチオン状態の層とラジカルアニオン状態の層とが積層された構造のものを好ましく用いることができる。

# $[0\ 0\ 3\ 4\ ]$

そして図1の実施の形態では、陽極1と陰極2の一方を光反射性電極、他方を光透過性電極として形成し、光反射性電極の発光層3の側の表面を凹凸に形成して光散乱性として形成したものである。この光散乱性かつ光反射性の電極によって光散乱手段5が形成されるものである。図1の実施の形態では陽極1をこの光散乱性かつ光反射性の電極として形成し、陰極2を光透過性電極として形成してある。

# [0035]

光反射性電極の表面を凹凸に形成する方法は、特に限定されるものではない、例えば、 基板10の表面もしくは基板10の表面に設けた層の、電極を形成する面に対して、サン ドブラスト加工、フロスト加工、スタンプ加工、エッチング加工等により凹凸化を施した 後に、この凹凸面に電極を形成することによって行なう方法、有機系樹脂やガラス等の母 材に、樹脂ビーズ、ガラス、中空ガラスビーズ、シリカ、酸化バリウム、酸化チタン、樹 脂ビーズ等の各種粒子を散在させたものを、塗布やゾルゲル法等によって成膜し、表面凹 凸を有する膜を設けた後に、この凹凸膜に電極を形成する方法を挙げることができる。ま たフォトレジスト等を用いて凹凸パターンを基板10の表面に設けた後に、この凹凸パタ ーンの上に電極を形成する方法を挙げることができ、さらに、マスクを用いて厚みの異な る部分を有する電極を形成する方法等を挙げることができる。その他、基板10の表面に 直接凹凸を形成せず、他の基材上に凹凸を形成したものを転写したり貼付したりする各種 の方法を利用することも可能である。光反射性電極の表面の凹凸の大きさは、光を散乱す る特性を満足するものであればよく、形成法に応じて適宜選択されるものである。また光 反射性電極の凹凸のパターンは、ランダムなものでも良いし、必要に応じてそのサイズが 規定された回折格子、ゾーンプレートなどでも構わない。さらに、所望の発光波長に応じ てサイズ、パターン、向きを適宜選択し、基板10上の所定の位置にそれぞれ形成するこ とも好ましい。

#### $[0\ 0\ 3\ 6\ ]$

上記のように形成される図1の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が光透過性電極の陰極2の側へ進行して、陰極2を通して出射される他、各発光層3から陽極1の側へ進行した他の光は、光反射性電極の陽極1で反射され、陰極2を通して出射される。このとき、陽極1は光散乱性電極でもあるので、光は陽極1の表面で散乱して反射される。従ってこの散乱した反射光は光透過性電極の陰極2から任意の方向に出射され、かつ発光層3から陰極2の側へ進行する一部の光との干渉を生じないために、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。そして有機発光素子の各層の膜厚変動に対する発光輝度、発光色の変化が小さくなり、さらに光の利用効率を高くすることができるものである。

#### $[0\ 0\ 3\ 7\ ]$

図2は請求項1及び2の発明の他の実施の形態の一例を示すものである。図1の実施の形態では基板1上に設ける電極を光散乱性かつ光反射性に形成したが、この実施の形態では、基板1上に設ける電極を光透過性に形成し、基板1上以外の部位に設ける電極を光散乱性かつ光反射性に形成してある。図2の実施の形態では陰極2をこの光散乱性かつ光反射性の電極として形成してある。

#### [0038]

図2の実施の形態では光反射性電極の発光層3の側の表面を凹凸に形成して光散乱性として形成するものであるが、凹凸の形成方法としては、例えばマスクによって発光層3上

に設けられる電子注入層の膜厚みに変化を与えて凹凸に成膜し、この上に電極を形成する方法などを挙げることができる。その他の構成は図1のものと同じである。

# [0039]

そしてこの実施の形態にあって、各発光層 3 で発光される光は、一部が光透過性電極の陽極 1 の側へ進行して、陽極 1 及びガラスなどで透明に形成される基板 1 0 を通して出射される他、各発光層 3 から陰極 2 の側へ進行した他の光は、光反射性電極の陰極 2 で反射され、陽極 1 及び基板 1 0 を通して出射される。このとき、陰極 2 は光散乱性電極でもあるので、光は陰極 2 の表面で散乱して反射され、反射光は光透過性の陽極 1 及び基板 1 0 を通して任意の方向に出射され、かつ発光層 3 から陽極 1 の側へ進行する一部の光との干渉を生じないために、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

# [0040]

図3は請求項1及び3の発明の実施の形態の一例を示すものであり、陽極1と陰極2を光透過性電極として形成し、光透過性電極の陽極1と陰極2の一方に、その発光層3とは反対側に光散乱性かつ光反射性の要素6を設けるようにしたものである。図3の実施の形態では光透過性電極の陰極2の発光層3と反対側の表面に光散乱性かつ光反射性の要素6を設けるようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。この光散乱性かつ光反射性の要素6によって光散乱手段5が形成されるものである。光散乱性かつ光反射性の要素6は電極の表面に直近で形成する必要はなく、光学的に近接して設けられていればよい。

# $[0 \ 0 \ 4 \ 1]$

この光散乱性かつ光反射性の要素 6 としては、アルミニウム、クロム、銀等金属の薄膜を蒸着やスパッタその他任意の方法で成膜した反射膜、反射性粒子を塗布した反射膜、誘電体等の多層膜による反射膜など、光反射膜の電極側の表面を光散乱性にしたもので形成することができる。光散乱性の形成方法は特に限定されるものではないが、例えば前記の表面凹凸を作る際に例示した各種方法を用いて凹凸表面を形成する他、屈折率の異なる母材と粒子とを混合したものを塗布して光散乱層を形成したり、複数の成分を最終的に生成する構成でのゾルゲル法によって散乱層を形成したり、内部に空洞を設けた層や複数の材料の相分離により散乱を示す層を形成したり、微細粒子を表面に整列乃至散在させて光散乱乃至回折性を付与する層を形成したりする方法などを挙げることができる。また後述の光反射層 6 a と光散乱層 6 b を組み合わせて光散乱性かつ光反射性の要素 6 を形成することもできる。その他の構成は図1のものと同じである。

#### $[0 \ 0 \ 4 \ 2]$

上記のように形成される図3の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が光透過性電極の陽極1の側へ進行して、陽極1及びガラスなどで光透過性に形成される基板10を通して出射される他、各発光層3から陰極2の側へ進行した他の光は、陰極2を透過した後に光散乱性かつ光反射性の要素6で反射され、陽極1及び基板10を通して出射される。このとき、光は光散乱性かつ光反射性の要素6で散乱して反射されるので、散乱した反射光は光透過性の陽極1及び基板10を通して任意の方向に出射され、かつ発光層3から陽極1の側へ進行する一部の光との干渉を生じないために、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

#### $[0\ 0\ 4\ 3\ ]$

図4は請求項1及び3の発明の他の実施の形態の一例を示すものである。この実施の形態では、陽極1と陰極2を光透過性電極として形成し、光透過性の基板10の陽極1と反対側の外面に光散乱性かつ光反射性の要素6を設けるようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。この光散乱性かつ光反射性の要素6は図3の実施の形態と同様にして形成することができるが、基板10の表面に直接形成しても良いし、あるいは別の基材に別途形成しておき、必要に応じて転写、貼付等の方法によって用いることも可能である。また光透過性の基板10自体が光散乱性を有するものでもよい。光散乱性の基板10の材質や構造は特に限定しないが、例えば複数の高分子を混合・相分離させることによ

り散乱性を持たせたもの、屈折率の異なるあるいは反射性の成分を部分的に含有することで散乱性を有するものなどが挙げられる。その他の構成は図1のものと同じである。

# $[0 \ 0 \ 4 \ 4]$

この実施の形態の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が光透過性電極の陰極2の側へ進行して、陰極2を通して出射される他、各発光層3から陽極1の側へ進行した他の光は、陽極1及び基板10を透過した後に光散乱性かつ光反射性の要素6で反射され、陰極2を通して出射される。このとき、光は光散乱性かつ光反射性の要素6で散乱して反射されるので、散乱した反射光は光透過性の陰極2を通して任意の方向に出射され、かつ発光層3から陰極2の側へ進行する一部の光との干渉を生じないために、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

# [0045]

図5は請求項1及び3の発明のさらに他の実施の形態の一例を示すものである。この実施の形態では、陽極1と陰極2を光透過性電極として形成し、陽極1と基板10の間に光散乱性かつ光反射性の要素6を設けるようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。そして図5の実施の形態では、陽極1と反対側の光反射層6aと陽極1側の光散乱層6bの二層構造に光散乱性かつ光反射性の要素6を形成するようにしてある。

#### $[0\ 0\ 4\ 6]$

光反射層6aの種類および形成方法は、特に限定されるものではないが、アルミニウム、クロム、銀等金属の薄膜を蒸着やスパッタその他任意の方法により成膜したもの、反射性粒子を塗布したもの、誘電体等の多層膜によって形成したものなどを挙げることができる。

#### $[0 \ 0 \ 4 \ 7]$

また光散乱層 6 b の種類および形成方法は、特に限定されるものではないが、例えば前記の表面凹凸を作る際に例示した各種方法等により形成された凹凸が散乱性の層として機能する層、屈折率の異なる母材と粒子とを混合したものを塗布して散乱層としたもの、複数の成分を最終的に生成する構成でのゾルゲル法によって形成される散乱層、内部に空洞を設けた層、複数の材料の相分離により散乱を示す層、微細粒子を表面に整列あるいは散在させて光散乱あるいは回折性を付与した層、などが挙げられる。これらの層 6 a , 6 b は基板 1 0 の表面に直接形成しても良いし、あるいは別の基材に別途形成し、必要に応じて転写や貼付等の方法によって用いることも可能である。その他の構成は図 1 のものと同じである。

#### [0048]

この実施の形態の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が光透過性電極の陰極2の側へ進行して、陰極2を通して出射される他、各発光層3から陽極1の側へ進行した他の光は、陽極1を透過した後に光反射層6aで反射され、陰極2を通して出射される。このとき、光は光反射層6aで反射される際に、光散乱層6bで散乱されるので、散乱した反射光は光透過性の陰極2を通して任意の方向に出射され、かつ発光層3から陰極2の側へ進行する一部の光との干渉を生じないために、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

#### [0049]

図6は請求項1及び4の発明の実施の形態の一例を示すものであり、陽極1と陰極2の一方を光反射性の電極で形成し、他方を光散乱性かつ光透過性の電極で形成するようにしたものである。この光散乱性かつ光透過性の電極によって光散乱手段5が形成されるものである。図6の実施形態では、基板10の側の陽極1を光散乱性かつ光透過性の電極で形成し、基板10と反対側の陰極2を光反射性電極で形成するようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。

#### $[0\ 0\ 5\ 0]$

光散乱性かつ光透過性の電極の種類及び形成方法は、特に限定されるものではないが、例えばマスクを用いて凹凸形状を有する光透過性の電極を形成することによって、この凹凸形状で光散乱性を付与する方法、光透過性の電極を部分的にエッチングして凹凸形状を

付与することによって、光散乱性を与える方法、前述のように基板10の表面に凹凸形状を予め形成しておき、この上に光透過性の電極を形成して凹凸形状にすることよって、光散乱性を付与する方法、屈折率の異なる複数の材質からなる光透過性の電極を形成して光散乱性を発現させる方法、ITO等の透明導電性材料とそれとは屈折率の異なるシリカ等の微粒子を塗布後に焼成して部分的に屈折率が異なる電極構成物とすることによって、光散乱性を得る方法などが挙げられる。その他の構成は図1のものと同じである。

# $[0\ 0\ 5\ 1]$

上記のように形成される図6の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が陽極1の側へ進行して、陽極1及びガラスなどで光透過性に形成される基板10を通して出射される他、各発光層3から陰極2の側へ進行した他の光は、光反射性の陰極2で反射され、陽極1及び基板10を通して出射される。このとき、陽極1は光散乱性かつ光透過性に形成されているので、光が陽極1を通過する際に散乱される。従って、陽極1側へ進行した光及び反射光はともに散乱された状態で、陽極1及び基板10を通して任意の方向に出射されるものであり、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

# [0052]

図7は請求項1及び5の発明の実施の形態の一例を示すものであり、陽極1と陰極2の一方を光反射性の電極で形成し、他方を光透過性の電極で形成すると共に、この光透過性電極の発光層3と反対側に光散乱性かつ光透過性の要素7を設けるようにしたものである。この光散乱性かつ光透過性の要素7によって光散乱手段5が形成されるものである。図7の実施形態では、基板10側の陽極1を光透過性電極で形成し、基板10と反対側の陰極2を光反射性電極で形成するようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。

#### $[0\ 0\ 5\ 3]$

光散乱性かつ光透過性の要素 7 は、例えば、上記の光散乱性かつ光透過性の電極や、光散乱層 6 b などと同様な層で形成することができるものである。またこの光散乱性かつ光透過性の要素 7 は光透過性電極に直接接して設けるようにしてもよく、光透過性電極との間に別の構成要素が挿入されていてもよい。

#### $[0\ 0\ 5\ 4\ ]$

ここで、光散乱性かつ光透過性の要素 7 を光透過性電極と基板 1 0 の間など、屈折率の異なる 2 種の材質間に設ける場合、光散乱性かつ光透過性の要素 7 を形成する層を構成する材質の屈折率は、必ずしも両側の 2 種の材質の屈折率に依存するものではないが、光散乱性かつ光透過性の要素 7 を形成する層を構成する材料が 1 種の場合には、どちらかの屈折率に近いものが好ましく、 2 種以上の場合には、1 つが片側の屈折率、もう 1 つが他方の屈折率に近いものが好ましいものであり、光散乱性かつ光透過性の要素 7 に入射される光や出射される光の全反射分率を低減させることができ、結果として光利用効率を向上させることが可能であるので好ましい。また、光透過性電極、光反射性電極のいずれを基板 1 0 上に設けるかにかかわらず、有機発光素子を形成する基板 1 0 上に凹凸を設けた場合、その凹凸は直上の電極のみならず発光層 3 などの有機層、等電位面形成層 4 もしくは電荷発生層 4 、対向する陽極 1 と陰極の、一部もしくは全ての形状に付与されて各層が凹凸形状となることがあるが、得られた有機発光素子に致命的な影響を与えない限り問題とはならない。

#### $[0\ 0\ 5\ 5]$

上記のように形成される図7の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が陽極1の側へ進行して、光透過性の陽極1及びガラスなどで光透過性に形成される基板10を通して出射される他、各発光層3から陰極2の側へ進行した他の光は、光反射性の陰極2で反射され、陽極1及び基板10を通して出射される。このとき、陽極1の外側には光散乱性かつ光透過性の要素7が設けられているので、光は陽極1から光散乱性かつ光透過性の要素7を通過し、その際に散乱される。従って、陽極1側へ進行した光及び反射光はともに散乱された状態で、反射光は基板10を通して任意の方向に出射されるも

のであり、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

# [0056]

図8は請求項1及び6の発明の実施の形態の一例を示すものであり、隣接する発光層3の間に設けられる等電位面を形成する層4もしくは電荷発生層4を光散乱性に形成するようにしたものである。この光散乱性の等電位面形成層4もしくは電荷発生層4によって光散乱手段5が形成されるものである。図8の実施形態では、基板10側の陽極1を光透過性電極で形成し、基板10と反対側の陰極2を光反射性電極で形成するようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。

# $[0\ 0\ 5\ 7]$

等電位面形成層 4 や電荷発生層 4 を光散乱性に形成するにあったっては、例えば、前述のように等電位面形成層 4 や電荷発生層 4 を形成する際に、複数のマスクを用いて部分的に厚みが異なるようにこれらの層 4 を形成する方法、部分的に組成が異なる部分を層内部に有するようにこれらの層 4 を形成する方法、形成した電荷発生層 4 の一部をリフトオフ、レーザー加工等によって除去する方法、電荷発生層 4 の厚み方向のいずれかの位置に部分的に導電膜(透明導電膜や金属膜等)を形成する方法などを例として挙げることができる。また、等電位面形成層 4 もしくは電荷発生層 4 を複数層形成した素子構造の場合には、いずれか 1 つの等電位面形成層 4 もしくは電荷発生層 4 が光散乱性を有していればよく、必ずしも全ての等電位面形成層 4 もしくは電荷発生層 4 が光散乱性を有している必要はない。その他の構成は図 1 のものと同じである。

# [0058]

上記のように形成される図8の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が陽極1の側へ進行して、光透過性の陽極1及びガラスなどで光透過性に形成される基板10を通して出射される他、各発光層3から陰極2の側へ進行した他の光は、光反射性の陰極2で反射され、陽極1及び基板10を通して出射される。このとき、素子内に位置する等電位面形成層4もしくは電荷発生層4は光散乱性に形成されているので、光が等電位面形成層4もしくは電荷発生層4を通過する際に散乱される。従って、陽極1側へ進行した光及び反射光はともに散乱された状態で、陽極1及び基板10を通して任意の方向に出射されるものであり、かつ発光層3から陽極1の側へ進行する一部の光との干渉を生じないために、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができるものである。

#### [0059]

図9は請求項7の発明の実施の形態の一例を示すものであり、陽極1と陰極2をともに光透過性電極として形成し、陽極1と陰極2のいずれか一方の発光層3と反対側に光反射性の要素8が設けてある。図の実施の形態では、発光した光を出射させるために光透過性に形成される基板10と反対側に配置される陰極2の外側に光反射性の要素8を設けるようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。そして光の出射側と反対側端部に配置される発光層3と光反射性要素8の反射面との距離が実質的に光学干渉をしない距離以上になるように、陰極2から離れた位置に光反射性要素8を設けるようにしてある。発光層3と光反射性要素8の反射面との距離は、特に限定されるものではないが、 $1 \mu m \sim 1 m m$ 程度の範囲が好ましい。 $1 \mu m$ 未満である場合、ある程度の光学干渉が発生することがあり、また1 m mを超える場合には、特に発光面積が小さいときには鉛直方向以外の角度から観察した際に発光位置ずれが観測されることがある。

#### $[0\ 0\ 6\ 0\ ]$

図9の実施の形態では、発光層3と光反射性要素8との間に光学緩衝要素として光学的スペーサ11を設けることによって、発光層3と光反射性要素8との距離が実質的に光学干渉をしない距離以上になるようにしてある。この光学的スペーサ11としては、光の透過率が高く、有機発光素子に悪影響を与えないものであればその材質や形成方法は任意であるが、例えば、透明樹脂、透明フィルム、透明ガラス、シリカ膜などによって形成することができる。また光反射性要素8は、既述の光反射性の電極を形成する材料や、図5の光反射層6aを形成する材料などを用いて、同様に形成することができる。陰極2(光透過性電極)と光反射性要素8の間は光学的に密着していても、していなくても構わないた

め、光反射性要素 8 を設けた光学的スペーサ 1 1 を別体化して陰極 2 の近隣に位置させることも可能であるし、また光反射性要素 8 のみを陰極 2 の近隣に位置させることも可能である。その他の構成は図 1 のものと同じである。

# $[0\ 0\ 6\ 1\ ]$

上記のように形成される図9の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が陽極1の側へ進行して、光透過性の陽極1及びガラスなどで光透過性に形成される基板10を通して出射される他、各発光層3から陰極2の側へ進行した他の光は、陰極2を通して光反射性要素8で反射され、陽極1の側へ進行して陽極1及び基板10を通して出射される。このとき、発光層3と光反射性要素8との距離を光学干渉をしない距離以上に設定してあるので、陰極2を通して光反射性要素8に進行してきた光は光反射性要素8の反射面でほぼ正反射して陽極1の側へ戻り、かつ、発光層3から陽極1の側へ進行した光とは干渉しないものとして、出射させることができるものである。従って、発光輝度、発光色の変化が小さくなり、さらに光の利用効率を高くすることができるものである。

# $[0\ 0\ 6\ 2]$

そしてこの種の有機発光素子は、上記のように光反射性要素8で反射された光に基づく 干渉効果の影響を受けないために、素子の膜厚設計の自由度も高まるものである。具体的 には、一般に知られている発光層一電極ミラー間の光学距離を4分の1波長の奇数倍に調 整することが不要である。また、発光層一最大屈折率段差位置間の光学距離を4分の1波 長の偶数倍に調整する必要が小さくなる。すなわち素子効率その他の特性に鑑み、任意の 膜厚にて素子を作製することが可能となるものであり、これはすなわち、膜厚ずれが起き たときの発光色のずれが小さいことを意味しており、膜厚管理の厳密さを緩和できるもの である。

# $[0\ 0\ 6\ 3]$

図10は請求項7の発明の他の実施の形態の一例を示すものであり、陽極1と陰極2をともに光透過性電極として形成し、ガラスなどで光透過性に形成される基板10の外面に光反射性の要素8が設けてある。図の実施の形態では、基板10の表面に陽極1を設けると共に陰極2を基板10と反対側に配置し、陽極1の発光層3と反対側に光反射性要素8が設けられるようにしてある。勿論、陽極1と陰極2は逆であってもよい。そしてこの実施の形態では、基板10を利用して、光の出射側と反対側端部に位置する発光層3と光反射性要素8の反射面との距離が実質的に光学干渉をしない距離以上になるようにしてあり、基板10が陽極1と光反射性要素8の間の光学的スペーサ11として作用するようにしたものである。その他の構成は図9のものと同じである。

# $[0\ 0\ 6\ 4]$

このように形成される図10の有機発光素子にあって、各発光層3で発光される光は、一部が陰極2の側へ進行して、光透過性の陰極2を通して出射される他、各発光層3から陽極1の側へ進行した他の光は、光透過性の陽極1と基板10を通して光反射性要素8で反射され、陰極2の側へ進行して陰極2を通して出射される。このとき、発光層3と光反射性要素8との距離を光学干渉をしない距離以上に設定してあるので、陽極1を通して光反射性要素8に進行してきた光は光反射性要素8の反射面でほぼ正反射して陰極2の側へ戻り、かつ、発光層3から陰極2の側へ進行した光とは干渉しないものとして、出射させることができるものである。

#### $[0\ 0\ 6\ 5]$

上記の各実施の形態にあって、複数の各発光層3は異なる色を発光するように形成することができる。この場合、複数の発光層3がすべて異なる発光色である必要はないが、少なくとも2種類の異なる発光色の発光層3から形成するものである。このように異なる発光色の発光層3で形成することによって、異なる色を混色した状態で有機発光素子から出射させることができるものであり、多くの色の有機発光素子を形成することが可能になるものである。また発光層3の層数、発光色の選定等によって、発光色を調整することが可

能である。そして、各発光層3から発光される色が光の三原色や、光の補色などである場合、複数の発光層3から発光される色が混色すると白色になる。従ってこの場合には、有機発光素子を液晶表示機用バックライトや照明用光源などとして用いることができるものである。

### $[0\ 0\ 6\ 6\ ]$

上記の各図に例示した有機発光素子の構造はあくまでも一例であり、本発明はこれらのみに限定されるものではなく、各構造を適宜組み合わせて使用することもできる。また、本発明の有機発光素子に用いられる基板、有機材料(ホール注入材料、ホール輸送材料、発光層ホスト、発光層ドーパント、電子輸送材料、電子注入材料)、各種材料(電極、電荷発生層用材料、等電位面用材料、金属錯体、各種無機材料)等、および有機層(発光層、ホール輸送層、電子輸送層など)の積層順及び成分など素子の内部構成として例示したものは、本発明の趣旨に反しない限り、公知の任意のものを用いることができる。

# 【実施例】

# $[0\ 0\ 6\ 7]$

次に、本発明を実施例によって具体的に説明する。

# [0068]

# (実施例1)

無アルカリガラスの基板10上に、平均粒径500nmのシリカ粒子スラリーを塗布乾燥し、600℃で50分焼成した。基板10の表面の平均面粗さは約130nm、最大高低差は約2μmであった。この基板10の表面に、アセトン、イソプロピルアルコールによる超音波洗浄、 $UV/O_3$ 洗浄を施し、この後に、基板10の表面にCrの膜を2200Aの厚みでスパッタし、さらにその上に厚み800AのA1膜を真空蒸着によって形成し、光散乱性かつ光反射性の電極(陰極2)を形成した。

# $[0\ 0\ 6\ 9\ ]$

次に、上記の基板 10 を真空蒸着装置にセットし、図 11 (b)に示す形状の孔 12 をのマスク 13 を用いて、5 × 10 -5 Paの減圧下、バソクプロイン((株)同仁化学研究所製)と C s をモル比 1 : 1 で 2 0 0 A 厚に共蒸着して陰極 2 の上に電子注入層を形成した。次に電子注入層の上にジナフチルアントラセン誘導体(コダック製「BH-2」)に、ジスチリルアリーレン誘導体(化 1 )を 4 質量 % ドープした層を 5 0 0 A 厚積層することによって、青色発光層 3 を設けた。次にこの発光層 3 の上に、4 , 4 'ービス 1 Nー(ナフチル)ーNーフェニルーアミノ 1 ビフェニル(以下1 2 2 3 3 4 4 'ービス 1 4 '

#### $[0 \ 0 \ 7 \ 0]$

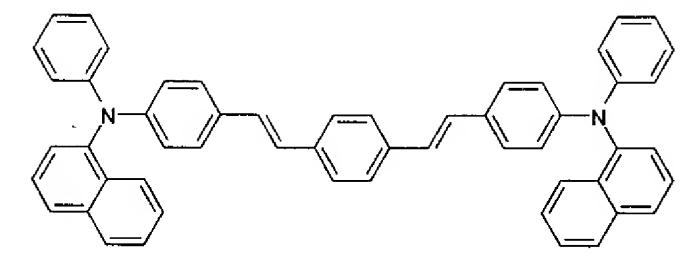
この後、上記の手順に基づき、電子注入層を200Å、発光層3を500Å、ホール輸送層を700Å、さらに電荷発生層4を100Å、電子注入層を200Å、発光層3を500Å、発光層3を500Å、ホール輸送層を800Å積層した。

# $[0\ 0\ 7\ 1]$

最後にこの上に1Å/sの蒸着速度で100Åの厚のAuを蒸着して、光透過性電極(陽極1)を形成することによって、3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した(図1参照)。

# $[0 \ 0 \ 7 \ 2]$

# 【化1】



# [0073]

#### (実施例2)

厚み0.7mmの無アルカリ基板ガラス板からなる透明基板1.0の表面に、ITO薄膜をスパッタして、膜厚1.1.00 Å、シート抵抗1.20/□0光透過性電極(陰極2)を形成した。このガラス基板1.0およびITO00陰極2を図1.1(a)に示す形にエッチング及び切断した後、純水、アセトン、イソプロピルアルコールで各1.0分間超音波洗浄をし、次いでイソプロピルアルコール蒸気で2分間蒸気洗浄して乾燥し、さらに3.0分間 UVオゾン洗浄した。

## $[0 \ 0 \ 7 \ 4]$

次に、基板10の陰極2を形成した面と反対側の面を#220の粗さのサンドブラストで粗面化し、次いでこの粗面に厚み1000AのA1膜を形成することによって、光拡散性かつ光反射性の要素6を形成した。

# [0075]

この後、実施例1と同様にして、基板10の陰極2の上に、電子注入層を200A、発光層3を500A、ホール輸送層を700A、電荷発生層4を100A、電子注入層を200A、電子注入層を200A、発光層3を500A、ホール輸送層を700A、電荷発生層4を100A、電子注入層を200A、電子注入層を200A、発光層3を500A、ホール輸送層を800Aの順に積層し、最後に1A/sの蒸着速度で100A厚のAuを蒸着して、光透過性電極(陽極1)を形成することによって、3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した(図4参照)。

#### [0076]

#### (実施例3)

#### $[0 \ 0 \ 7 \ 7]$

#### (実施例4)

旭電化工業株式会社製「アデカITO塗布液(ITO-L)」に平均粒径200nmのシリカ粒子を、ITOとシリカの重量比で20:1になるように添加混合して分散した。次にこの混合液を無アルカリガラス基板10の上にスピンコートし、160℃の大気中で5分乾燥した後、300℃で120分間焼成およびアニール処理を行った。この処理を3回繰り返すことによって、平均厚み5300AのITOシリカ混合膜を得た。次いで、この膜を研磨機によって研磨し、平均厚み4800A、表面平均粗さ1.3nmに調整した

。さらに、この基板10をイオン交換水を用いて洗浄した後、ITOシリカ混合膜の上にスパッタにより厚み200AのITO膜を成膜することによって、光散乱性かつ光透過性の電極(陽極1)を形成した。得られた陽極1のシート抵抗は、72**Ω**/□、基板10は全光線透過率69%、ヘーズ82%であった。

# [0078]

#### [0079]

(実施例5)

無アルカリガラスの基板 10 の上に、平均粒径 500 nmのシリカ粒子スラリーを塗布して乾燥した後、600 で 50 分間焼成し、光散乱性かつ光透過性の要素 7 を形成した。この光散乱性かつ光透過性の要素 7 を形成した基板 10 の表面の平均面粗さは約 130 nm、最大高低差は約  $2\mu$  mであった。

# [0808]

この基板1を用い、光散乱性かつ光透過性の要素7の表面に、IT0薄膜をスパッタして、膜厚1100A、シート抵抗27Ω/ $\square$ の光透過性電極(陽極1)を形成した。このガラス基板10およびIT0の陰極1を図11(a)に示す形に切断及びエッチングした後、純水、アセトン、イソプロピルアルコールで各10分間超音波洗浄をし、次いでイソプロピルアルコール蒸気で2分間蒸気洗浄して乾燥し、さらに30分間UVオゾン洗浄した。

#### [0081]

後は、実施例4と同様にして各層の形成を行ない、3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した(図7参照)。

#### [0082]

(実施例6)

実施例2と同様なITO薄膜の光透過性電極(陽極1)を形成したガラス基板10を用い、この基板10の陽極1の上に実施例4と同様にして各層の形成を行なった。次に、この基板10の陽極1と反対側の表面に、株式会社きもと製の光散乱シート「100-GM2」を、屈折率1.63のマッチングオイルを用いて貼り付けて光散乱性かつ光透過性の要素7を形成することによって、3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した(図7において光散乱性かつ光透過性の要素7を基板10の外面に形成したもの参照)。

#### [0083]

(実施例7)

電子注入層の膜厚を50Aに変更した他は、実施例5と同様にして3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した(図7参照)。

#### $[0\ 0\ 8\ 4]$

(実施例8)

実施例2と同様なITO薄膜の光透過性電極(陽極1)を形成したガラス基板10を用いた。そしてこの基板10を真空蒸着装置にセットし、図11(b)に示す形状のマスク

13を用いて、5×10 -5 P aの減圧下、 $\alpha$  - N P Dを 1 A/s の蒸着速度で 8 0 0 A厚に蒸着して、陽極1の上にホール輸送層を形成した。次にホール輸送層の上に、ジナフ チルアントラセン誘導体(コダック製「BH-2」)にジスチリルアリーレン誘導体(化 1)を4質量%ドープした層を500A厚積層することによって、青色発光層3を設けた 。次に発光層3の上に、バソクプロイン((株)同仁化学研究所製)とCsをモル比1: 1で共蒸着して電子注入層を設けた。この電子注入層の形成は、図11(b)のマスク1 3を用いて100Å厚に蒸着し、さらにこの上に20μm幅のラインと20μmのライン 間隔を有するマスクを重ねて300A厚に蒸着することによって行ない、電子注入層の上 面に凹凸を形成した。次いで、この電子注入層の凹凸面に五酸化バナジウム(V2O5) を成膜速度2 A/sで100 A厚に蒸着し、光散乱性の電荷発生層4を形成した。この後 、上記手順に基づき、ホール輸送層を700A、発光層を500A、電子注入層を200 A、さらに光散乱性の電荷発生層4を100A、ホール輸送層を700A、発光層3を5 ○○A、電子注入層を200A積層した。最後に陰極1としてA1を、図11(c)に示 す形の孔14あきのマスク15を用いてA1を4A/sの成膜速度で800A積層して、 光反射性の電極(陰極2)を形成することによって、3層の発光層3を備えた有機発光素 子を得た(図8参照)。

# [0085]

(比較例1)

厚みり、7 mmの無アルカリ基板ガラス板からなる透明基板10の表面に、I T O 薄膜をスパッタして、膜厚1100Å、シート抵抗12 $\Omega$ / $\square$ の光透過性電極(陽極1)を形成した。このガラス基板10およびI T O の陽極1を図11(a)に示す形にエッチング及び切断した後、純水、アセトン、イソプロピルアルコールで各10分間超音波洗浄をし、次いでイソプロピルアルコール蒸気で2分間蒸気洗浄して乾燥し、さらに30分間U V オゾン洗浄した。

# [0086]

続いて上記の基板10を真空蒸着装置にセットし、図11(b)に示す形状のマスク13を用いて、 $5 \times 10^{-5}$  Раの減圧下、 $\alpha-N$  Р Dを1A/s の蒸着速度で800 A 厚に蒸着して、陽極1の上にホール輸送層を形成した。次にホール輸送層の上に、ジナフチルアントラセン誘導体(コダック製「B H -2」)にジスチリルアリーレン誘導体(化1)を4質量%ドープした層を500 A 厚積層することによって、青色発光層3を設けた。次に発光層3の上に、バソクプロイン((株)同仁化学研究所製)とCsをモル比1:1で200 A 厚に共蒸着して電子注入層を設けた。次いで、五酸化バナジウム( $V_2O_5$ )を成膜速度2A/sで100 A 厚に蒸着し、電荷発生層4を形成した。この後、上記手順に基づき、ホール輸送層を700 A 、発光層を500 A 、電子注入層を200 A 、さらに電荷発生層4を100 A 、ホール輸送層を700 A 、発光層3を500 A 、電子注入層を200 A 積層した。最後に陰極1としてA1を、図11(C)に示す形の孔14あきのマスク15を用いてA1を4 A/s0の成膜速度で800 A 積層して、光反射性の電極(陰極2)を形成することによって、3層の発光層3を備えた有機発光素子を得た(図12参照)。

# [0087]

(比較例2)

電子注入層の膜厚を50Aに変更した他は、比較例1と同様にして3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した。

#### [0088]

(比較例3)

比較例1と同様のITO薄膜付きの基板10を用い、基板10のITO薄膜と反対側の面に1000Aの厚みのA1膜を蒸着して反射面を形成した。

#### [0089]

そして基板10のITO薄膜を光透過性の陰極2として、この陰極2の上に実施例1と同様にして、電子注入層を200A、発光層3を500A、ホール輸送層を700A、電

荷発生層4を100A、電子注入層を200A、発光層3を500A、ホール輸送層を700A、電荷発生層4を100A、電子注入層を200A、発光層3を500A、ホール輸送層を800Aの順に積層し、最後に1A/sの蒸着速度で100A厚のAuを蒸着して、光透過性電極(陽極1)を形成することによって、3層の発光層3を備えた有機発光素子を作製した。

# [0090]

(比較例4)

比較例1と同様のITO薄膜付きの基板10を用い、基板10のITO薄膜と反対側の面に1000Aの厚みのA1膜を蒸着して反射面を形成した。

# $[0 \ 0 \ 9 \ 1]$

そして基板10のITO薄膜を光透過性の陰極2として、この陰極2の上に実施例3と同様にして、バソクプロインとCsのモル比1:1の共蒸着層からなる電子注入層を200Å、バソクプロインのみからなる電子輸送層を500Å、A1gとルブレンをルブレンの重量分率7%で共蒸着した発光層3を300Å、ホール輸送層を400Å、酸化バナジウムからなる電荷発生層4を100Å、電子注入層200Å、BH-2とスチリルアリーレン誘導体からなる発光層3を500Å、ホール輸送層を700Å、電荷発生層4を100Å、電子輸送注入層を200Å、BH-2とスチリルアリーレン誘導体からなる発光層3を500Å、ホール輸送層を800Åの順に積層し、最後に1Å/sの蒸着速度で100Å厚のAuを蒸着して、光透過性電極(陽極1)を形成することによって、3層の発光層3を備えた白色発光の有機発光素子を作製した。

# [0092]

上記のように実施例  $1 \sim 8$  及び比較例  $1 \sim 4$  で作製した有機発光素子を、電源(KEITHLEY モデル 2 4 0 0 )に接続して 5 m A / c m 2 の定電流駆動を行い、その際の輝度を輝度計(トプコン社製「BM-9」;視野角  $0.2^\circ$ 、距離 4 5 c m)で測定した。また、CIE 色度をマルチチャンネルアナライザー(浜松ホトニクス社製「PMA-1」;測定距離 5 c m)を用いて測定した。これらの測定は、有機発光素子の鉛直正面方向( $0^\circ$ )からと、鉛直正面方向に対して 4  $5^\circ$  の方向からとで行なった。

# [0093]

そして、0°方向から測定した輝度と45°方向から測定した輝度の比を求め、また0°方向から観測した際のC I E 色度座標値の、C I E - x 値(x 1)、C I E - y 値(y 1)と、45°の方向から観測した際のC I E - x 値(x 2)、C I E - y 値(y 2)の 差と、((x 1 - x 2) $^2$  + (y 1 - y 2) $^2$ )の値を求めた。これらの結果を表 1 に示す。

#### $[0 \ 0 \ 9 \ 4]$

輝度(cd/m²) 色度 CIExy				$+(y1-y2)^2$				$+(y1-y2)^2$
輝度(cd/m²) 色度 CIExy		実施例 1						
色度 CIExy	753	740	1:0.98		<del> </del>			
	x: 0.160 v: 0.318	x: 0.157 v: 0.314	Δx: -0.003	0.25x10⁴				
		中体値の	2 y0.004			こと 社会 (国) シ		
	S	X.175177 4				ルトポメデリ ら		
(cd/m²)	1080	957	1:0.89		917	551	1:0.60	
色度 CIExy	x: 0.172	x: 0.180	Δx:+0.008	4.3x10-4	x:0.138	x:0.158	Δx:+0.020	6.3×10 <sup>-3</sup>
	y: 0.282	y: 0.301	Δy:+0.019		y:0.245	y:0.168	Δy:-0.077	
		実施例3				比較例4		
輝度(cd/m²)	1739	1582	1:0.91		1420	1039	1:0.73	
色度 CIExy	x: 0.319	x: 0.327	Δx:+0.008	1.5x10 <sup>4</sup>	x: 0.331	x: 0.352	Δx: -0.021	3.4×10 <sup>-3</sup>
	y: 0.371	y: 0.362	∆y:-0.009		y: 0.383	y: 0.329	Δy: +0.054	
		実施例4				-		
(cd/m²)	473	527	1:1.11		<b>,</b>			
色度 CIExy	x:0.140	x:0.159	Δx:+0.019	3.8×10 <sup>4</sup>				
	y:0.208	y:0.212	Δy:+0.004					
		実施例5			!	比較例1		
(cd/m²)	1176	994	1:0.85		825	456	1:0.55	
色度 CIExy	x:0.153	x:0.159	Δx:+0.006	1.8x10 <sup>-4</sup>	x:0.132	x:0.147	Δx:+0.015	5.9x10 <sup>-3</sup>
	y:0.221	y:0.233	Δy:+0.012		y:0.236	y:0.161	Δy:-0.075	
		実施例6						
(cd/m²)	961	692	1:0.8					
色度 CIExy	x:0.140	x:0.159	Δx:+0.019	2.7×10 <sup>-4</sup>	<b>.</b>			
	y.u.zu8	Y:0.212	Δy:+0.004					
		実施例 7				比較例2		
(cd/m²)	790	892	1:1.13		635	009	1:0.95	
色度 CIExy	x: 0.159	x: 0.170	Δx:+0.011	1.2x10 <sup>-3</sup>	x: 0.144	x: 0.176	Δx:+0.032	3.1×10 <sup>-3</sup>
	y: 0.217	y: 0.250	Δy:+0.033		y: 0.186	y: 0.232	Δy:+0.046	
		実施例8						
cd/m²)	893	825	1:1.04	1:0.92				
色度 CIExy	x: 0.165	x: 0.157	Δx: -0.008	2.3x10 <sup>-4</sup>				
	y: 0.275	y: 0.262	Δy: -0.013					

# [0095]

表1にみられるように、実施例1~8のものは、鉛直正面方向(0°)からと、45°の方向からの輝度の比や色度の差が小さく、発光輝度や発光色の角度依存性が小さいことが確認される。

# [0096]

#### (実施例9)

比較例1に準じて有機発光素子の作製を行なった。ただし、陰極2はITOを図11(c)のマスク15を用いて対向ターゲット式スパッタ装置によって4A/sで1000Aの厚みで積層して、光透過性電極として形成した。さらに、厚み0.4mmのガラスからなる光学スペーサ11の片面に厚み10000AのA1膜からなる光反射性要素8を設け

て図11(d)のように形成し、この光学スペーサ11を光反射性要素8と反対側の面で、陰極2の表面に屈折率1.5のマッチングオイルで貼付することによって、3層の発光層を備えた有機発光素子を得た(図9参照)。

# $[0 \ 0 \ 9 \ 7]$

(実施例10)

実施例9に準じて有機発光素子の作製を行なった。ただし、電子注入層の膜厚を50Aに設定し、また、光反射性要素8付きの光学スペーサ11を、基板10の陽極1と反対側の表面に屈折率1.5のマッチングオイルで貼付するようにして、3層の発光層を備えた有機発光素子を得た(図10参照)。

# [0098]

(比較例5)

比較例1に準じて有機発光素子を作製した。ただし、膜厚、層構成は以下の通りである。ホール輸送層を800A、BH-2とスチリルアリーレン誘導体からなる発光層3を500A、電子注入層を200A、電荷発生層4を100A、ホール輸送層を700A、A1qとルブレンをルブレンの重量分率7%で共蒸着した発光層3を300A、バソクプロインからなる電子輸送層を500A、電子注入層を200A、A1からなる陰極2を800Aに設定して、白色発光の有機発光素子を得た(図12参照)。

# [0099]

(実施例11)

比較例5に準じて有機発光素子を作製した。ただし、陰極2はITOを図11(c)のマスク15を用いて対向ターゲット式スパッタ装置によって4A/sで1000Aの厚みで積層して、光透過性電極として形成した。さらに、図11(d)の光学スペーサ11を陰極2の表面に屈折率1.5のマッチングオイルで貼付することによって、白色発光の有機発光素子を得た(図9参照)。

# 

# 

	°0	45°	北/差	$(x1-x2)^2$ + $(x1-x2)^2$	0	45°	此/差	$(x1-x2)^2$
			実施例 9	131.15/				14 15
輝度(cd/m²)	893	890	1:1.00					
色度 CIExy	x: 0.168	x: 0.163	Δx: -0.005	1.5x10-5				
	y: 0.299	y: 0.288	Δy: -0.011					
		אויינד	実施例 10					
輝度(cd/m²)	880	895	1:1.02					
色度 CIExy	x: 0.162	x: 0.165	Δx: 0.003	5.8x10-5				
	y: 0.284	y: 0.291	Δy: 0.007					
		אייט	実施例 11			<b>=</b>	比較例 5	
輝度(cd/m²)	1265	1290	1:1.02		1680	1370	1:0.82	
色度 CIExy	x: 0.323	x: 0.329	Δx:+0.006	7.2x10-4	x: 0.319	x: 0.362	Δx: +0.043	3.6x10-3
	y: 0.381	y: 0.375	Δy:-0.006		y: 0.379	y: 0.421	Δy: +0.042	

# [0102]

表2にみられるように、実施例9~11のものは、鉛直正面方向(0°)からと、45°の方向からの輝度の比や色度の差が小さく、発光輝度や発光色の角度依存性が小さいことが確認される。

# 【図面の簡単な説明】

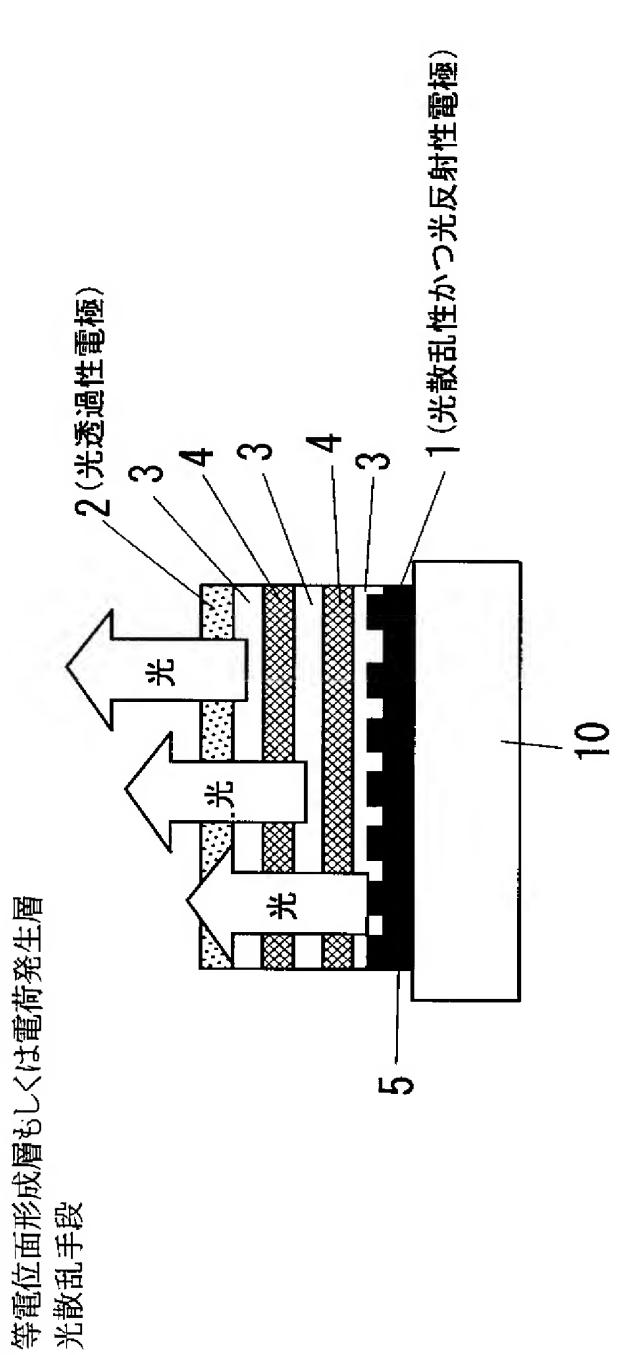
# $[0\ 1\ 0\ 3]$

- 【図1】請求項2の発明の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図2】請求項2の発明の他の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図3】請求項3の発明の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図4】請求項3の発明の他の実施の形態の一例を示す概略断面図である。

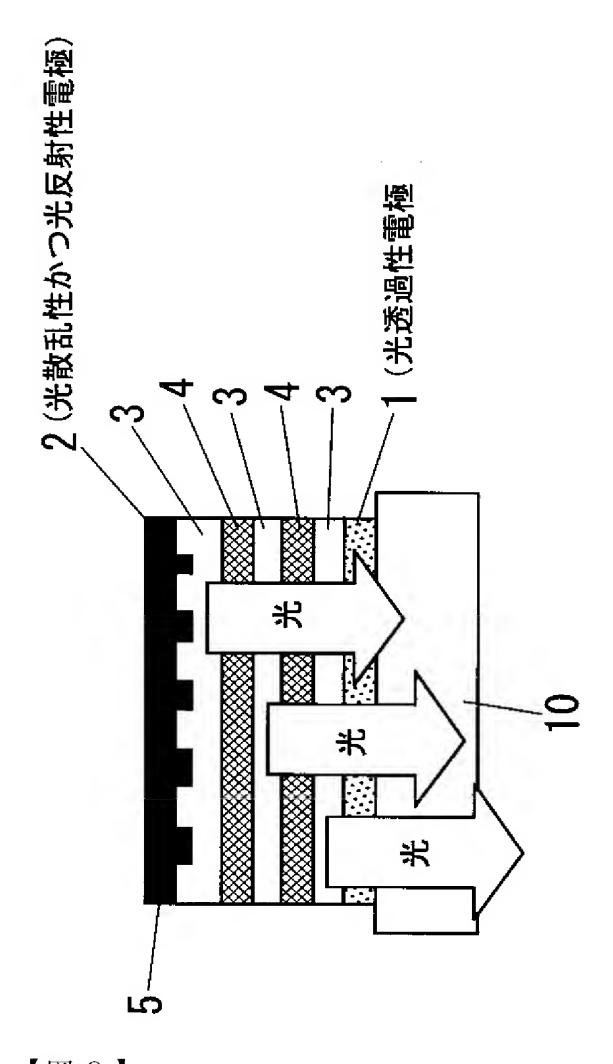
- 【図5】請求項3の発明のさらに他の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図6】請求項4の発明の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図7】請求項5の発明の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図8】請求項6の発明の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図9】請求項7の発明の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図10】請求項7の発明の他の実施の形態の一例を示す概略断面図である。
- 【図11】(a)は実施例及び比較例で用いる基板の平面図、(b)及び(c)は実施例及び比較例で用いるマスクの平面図、(d)は実施例で用いる光学スペーサの概略断面図である。
  - 【図12】従来例を示す概略断面図である。

# 【符号の説明】

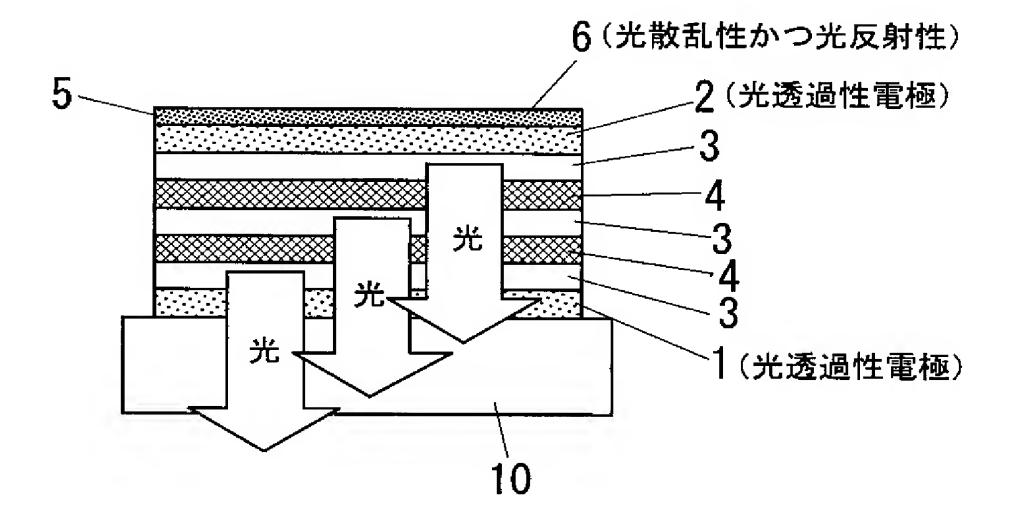
- $[0\ 1\ 0\ 4\ ]$
- 1 陽極
- 2 陰極
- 3 発光層
- 4 等電位面形成層もしくは電荷発生層
- 5 光散乱手段
- 6 光散乱性かつ光反射性の要素
- 7 光散乱性かつ光透過性の要素
- 8 光反射性の要素
- 10 基板

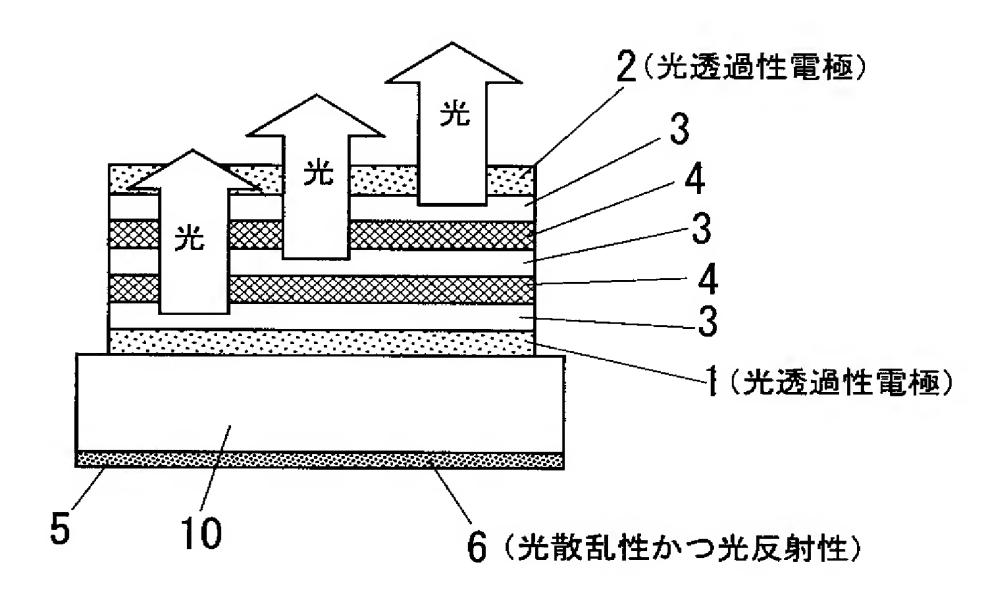


2 除極 3 発光層 4 等電位面 5 光散乱手

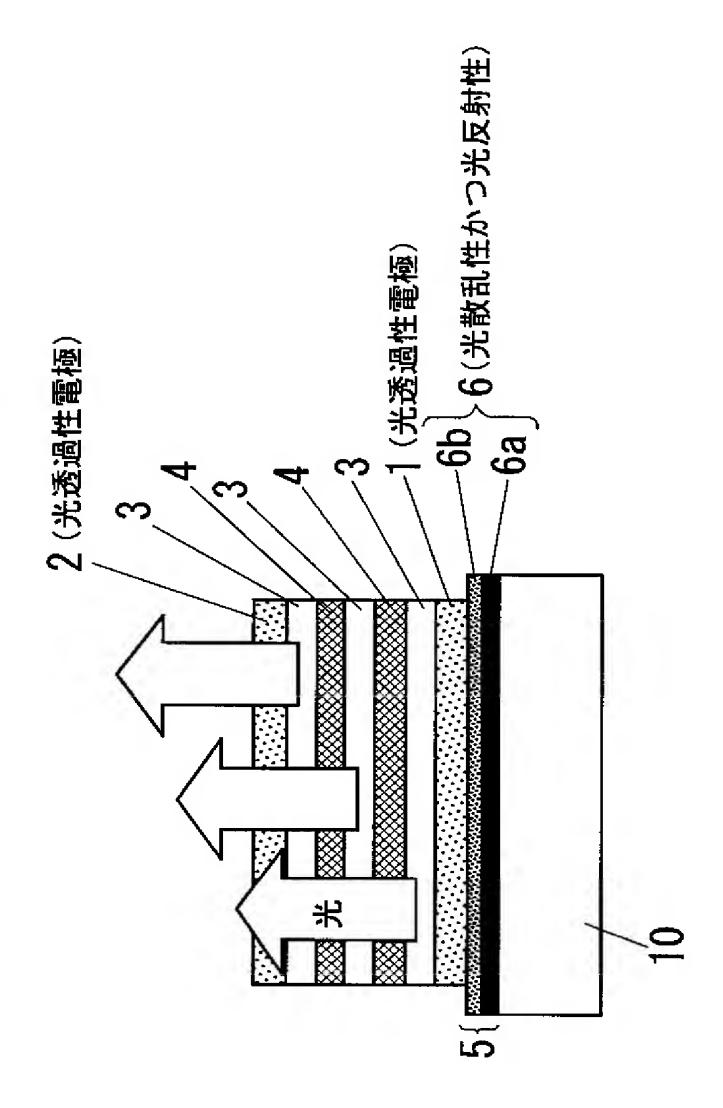


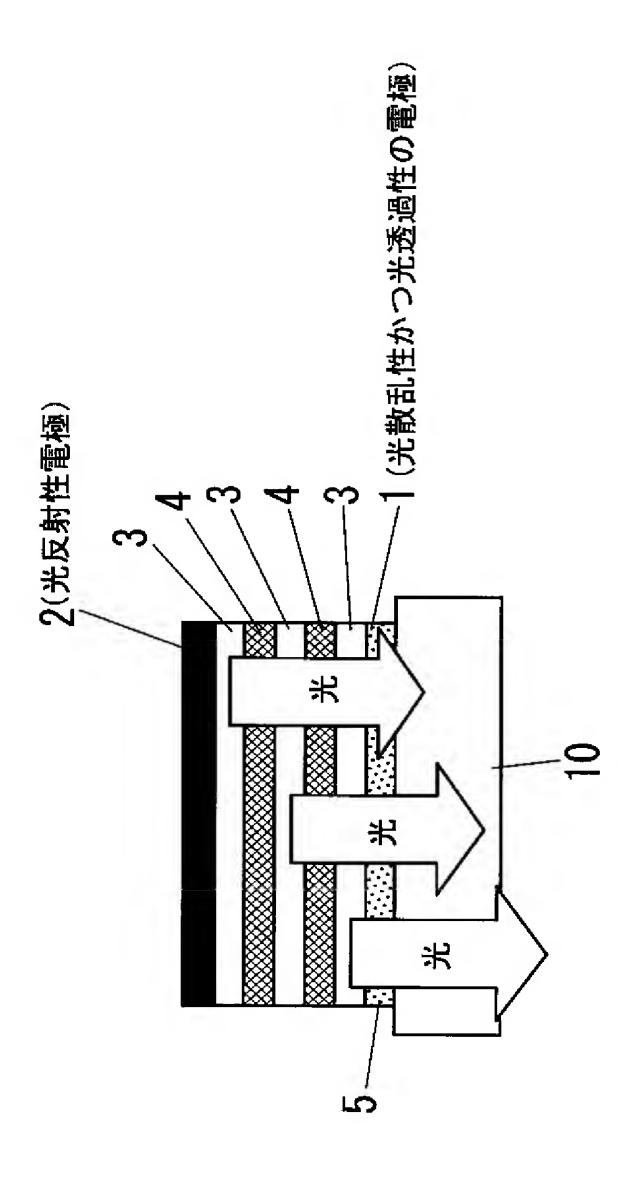
【図3】

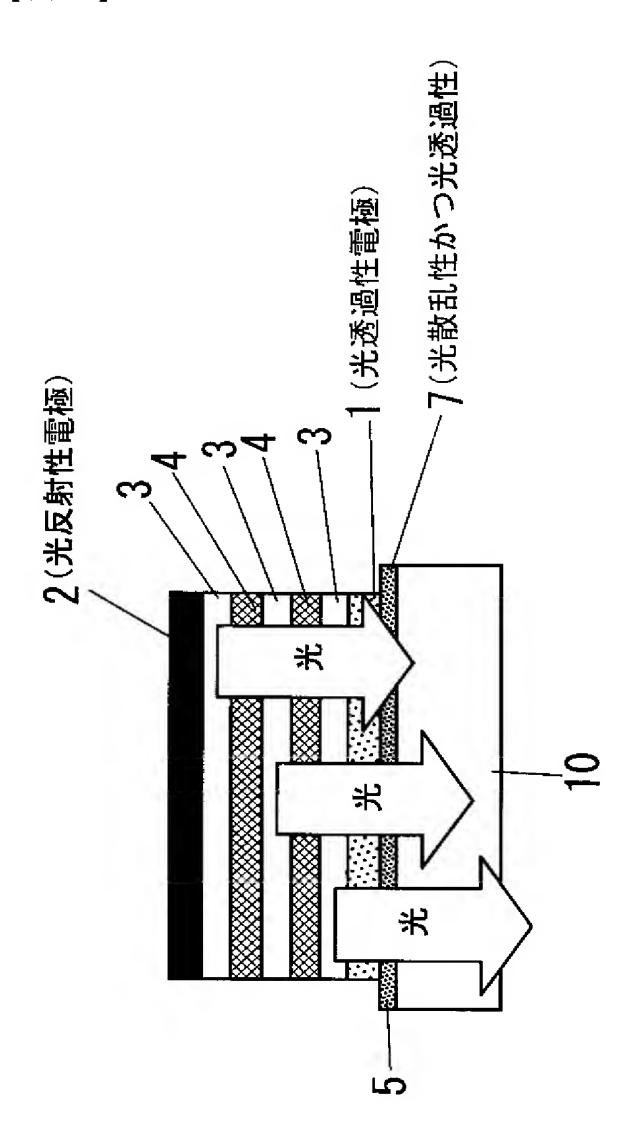




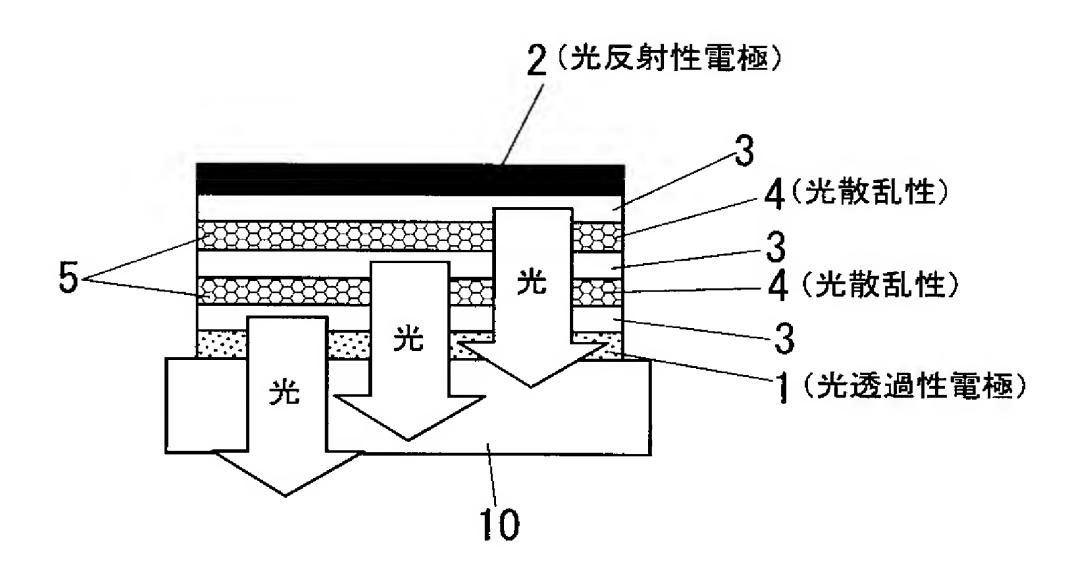
【図5】

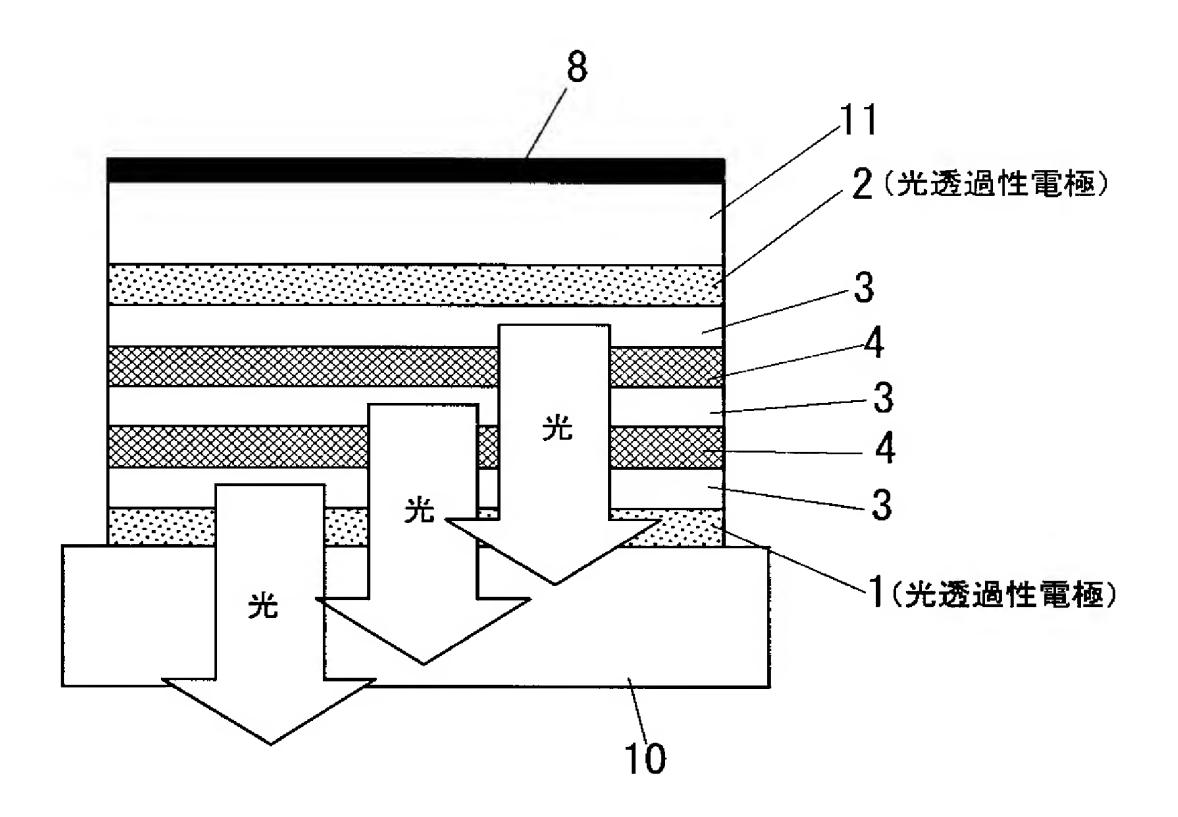




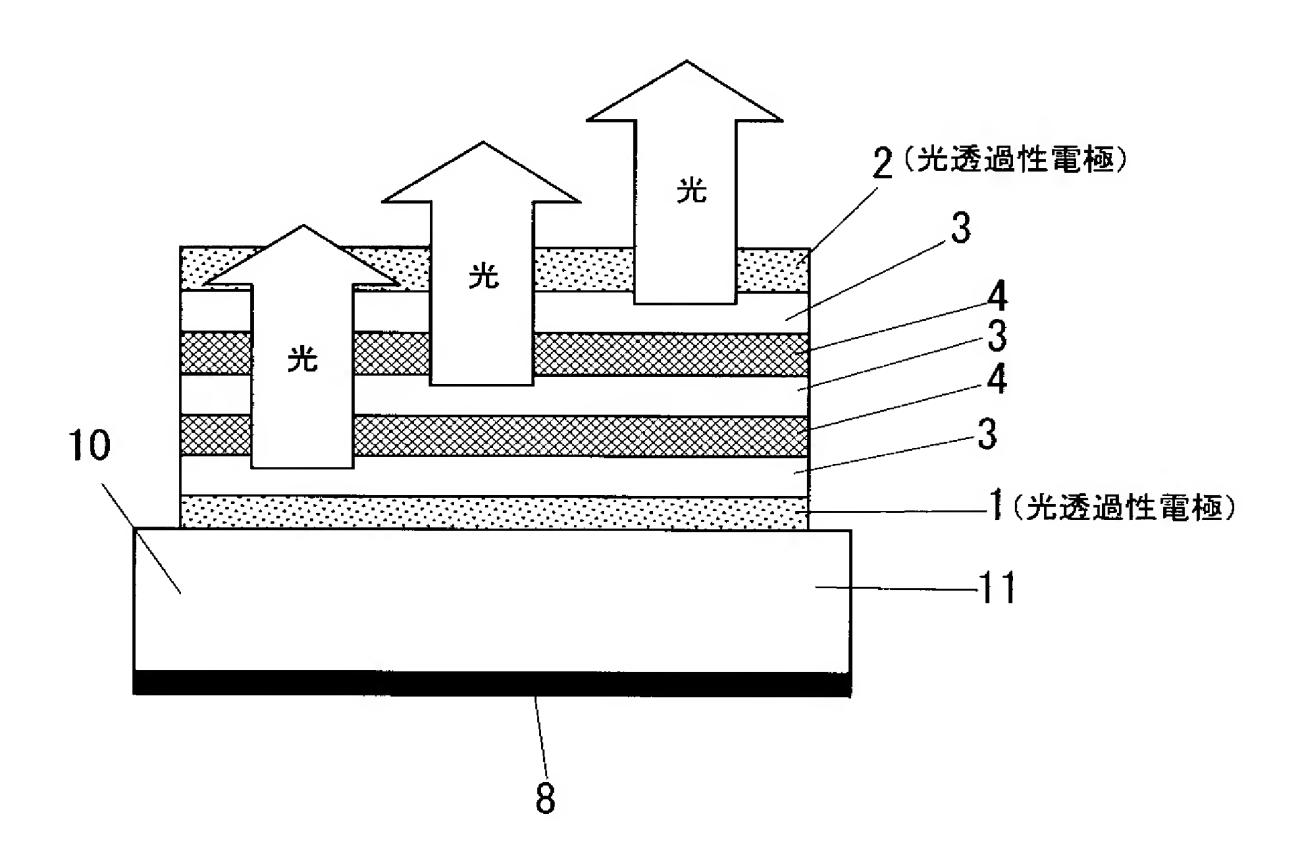


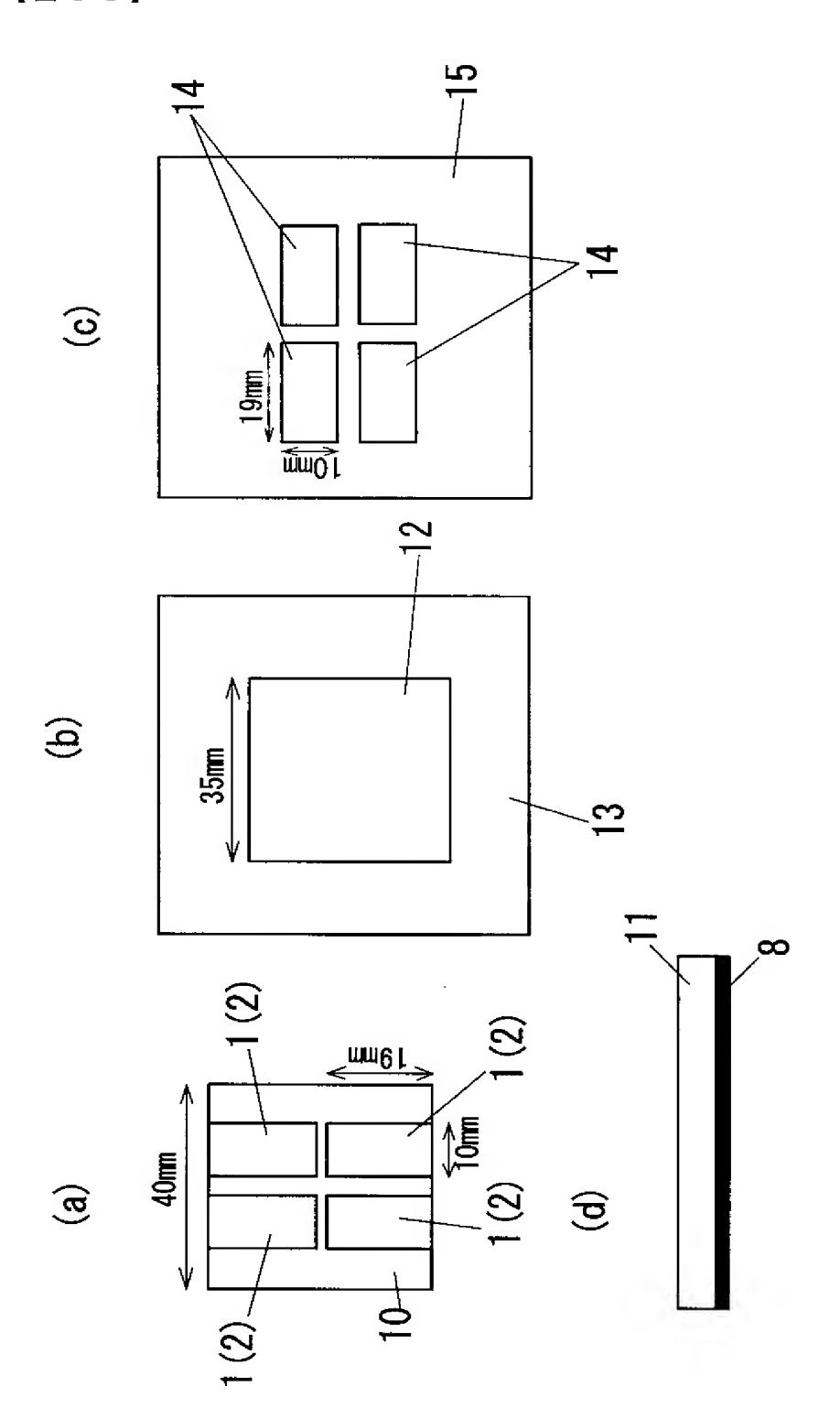
【図8】

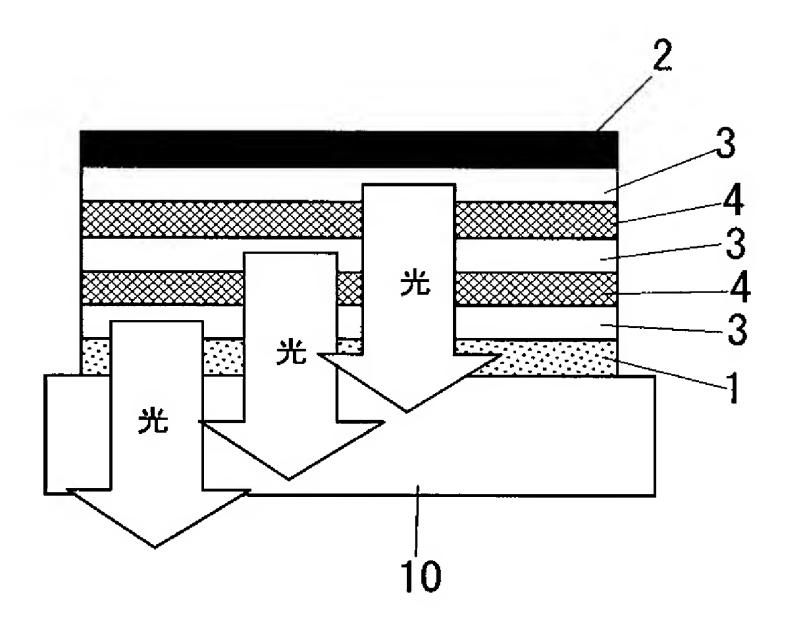




【図10】







【書類名】要約書

【要約】

【課題】 発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができると共に、膜厚変動に対する発光輝度、発光色の変化が小さく、さらに光の利用効率を高くすることができる有機発光素子を提供する。

【解決手段】 陽極1と陰極2の間に複数の発光層3を備え、各発光層3が等電位面を形成する層4もしくは電荷発生層4で仕切られた有機発光素子に関する。素子内部と素子外部の少なくとも一方に発光層3で発光した光を散乱させる光散乱手段5を備える。発光層3で発光した光を光散乱手段5で散乱させた状態で出射させることによって、発光輝度、発光色の角度依存性を小さくすることができる。

【選択図】 図1

【書類名】手続補正書【整理番号】04P00597

【提出日】 平成16年12月 9日

【あて先】 特許庁長官殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2004-92618

【補正をする者】

【識別番号】 000005832

【氏名又は名称】 松下電工株式会社

【補正をする者】

【識別番号】 593191350

【氏名又は名称】 株式会社アイメス

【代理人】

【識別番号】 100087767

【弁理士】

【氏名又は名称】西川恵清【電話番号】06-6345-7777

【手続補正]】

【補正対象書類名】特許願

【補正対象項目名】 国等の委託研究の成果に係る記載事項

【補正方法】 追加

【補正の内容】

【国等の委託研究の成果に係る記載事項】 平成15年度、新エネルギー・産業技術総合開発機構、「高効率有機デバイスの開発事業」委託研究、産業活力再生特別措置法第30条の適用を受ける特許出願

# 出願人履歷

大阪府門真市大字門真 1 0 4 8 番地 松下電工株式会社 5 9 3 1 9 1 3 5 0 19931015 新規登録

神奈川県藤沢市桐原町3番地株式会社アイメス